

物性実験グループ : 低温物性グループ

著者	福山 寛, 富永 昭, 森下 将史
雑誌名	年次研究報告
巻	1996
ページ	111-119
発行年	1997-09
URL	http://hdl.handle.net/2241/14005

VII-5. 低温物性グループ

助教授 福山 寛,
講師 富永 昭,
助手 森下将史,
大学院生 (6名)

〔1〕吸着 ^3He 薄膜の2次元核磁性の研究【福山, 森下】

グラファイト表面に吸着したヘリウム3 (^3He) 薄膜の第2層目が示す核磁性を, 90 μK に至る超低温で熱容量測定を行うことにより, ほぼ明らかにすることができた. この系は単原子膜なので空間的な2次元性に優れ, 隣接原子の量子トンネル効果に由来する核スピン ($S=1/2$) 間の交換相互作用 ($1\sim$ 数 mK) は完全に等方的で, 双極子-双極子相互作用に比べ3桁以上大きい. そのため, この核スピン系は現在実験的に得られる最も理想的な2次元量子スピン系のモデル物質とされている. また, ^3He の吸着面密度 (ρ) を変えることにより, 相互作用の大きさ (さらに符合も) が容易に広い範囲で可変であるという特徴がある. 我々の測定結果は, 特に低密度領域の反強磁性相の基底状態が長距離秩序をもたない, 恐らくはスピン液体的な新しいタイプのものであることを強く示唆するもので, 注目を集めている [論文: 1, 講演: 1, 4, 5, 7, 9, 13].

反強磁性相

図1に $\rho=18.2\text{ nm}^{-2}$ 付近の試料の熱容量測定の結果を示す. この面密度は他のグループによる高温の磁化測定からワイス温度が負, すなわち反強磁性相であることが分かっている. 2 mK 付近の緩やかなピークはスピン間の短距離秩序の成長に対応していると考えられる. 今回新たに, より低温 ($T\approx 0.3\text{ mK}$) で第二のピークが観測された. 第二ピークより低温では, 熱容量は温度にほぼ比例して減少する. これは基底状態からのスピン励起にギャップが存在しないか, 存在しても0.1 mK 以下と非常に小さいことを示している. この2次元固体のデバイ温度は10 K 程度と高いので, 我々が測定した温度

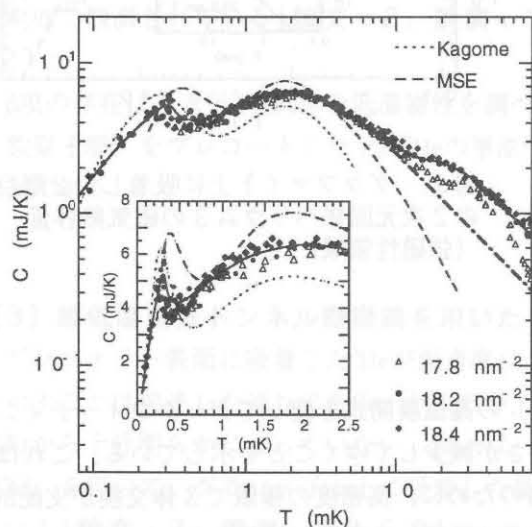


図1. グラファイト上に吸着した2層目の2次元固体ヘリウム3の磁気熱容量 (反強磁性領域). 吸着表面積は 387 m^2 .

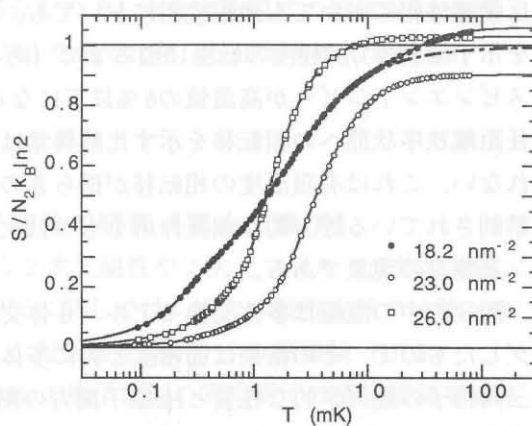


図2. グラファイト上に吸着した2層目の2次元固体ヘリウム3のスピンエントロピー.

範囲では系の熱力学的性質はすべて核スピンの自由度のみで決まっている．そのため熱容量データからスピンエントロピーの変化量を求めることができ、その値は図2に示すように $k_B N_2 \ln 2$ に良く一致する（ここで N_2 は2層目のスピンの数）．

比熱のダブルピーク構造はスピンの低エネルギー励起状態が非常に多いことを示しており、フラストレーションの大きな2次元反強磁性体に特徴的なものと考えられる．事実、カゴメ格子上的 $S=1/2$ ハイゼンベルグ反強磁性体（カゴメモデル：図1中の点線）と、三角格子上的多体交換相互作用のある系（多体交換モデル：図1中の破線）の二つのモデルは低温で我々が観測したものと定量的に近い比熱のダブルピーク構造を予測している．前者はスピンの幾何学的な配置がもたらすフラストレーション、後者は反強磁性的（偶数スピンの交換）および強磁性的（奇数スピンの交換）な多体交換の間の競合がもたらすフラストレーションという違いがあるが、いずれの場合も基底状態は長距離秩序をもたない、スピン液体的な新しいタイプのものである可能性が極めて高い．しかし、もともと三角格子構造をしている2層目が実効的なカゴメ格子となるためには全スピンの1/4が磁性的に結合していないと仮定する必要がある、これは先のエントロピーの議論と矛盾するので、我々の実験から単純な形のカゴメモデルは否定されたことになる．

強磁性相

一方、2層目の面密度を増してゆくと相互作用が全体として強磁性的に変化することがこれまでの磁化測定から明らかになっている．この面密度領域の $\rho = 23.0, 26.0 \text{ nm}^{-2}$ の試料に対する熱容量測定の結果を図3に示す．反強磁性相と異なり、第2ピークは消失し、第1ピークの中はより狭くなっている．また、ピークより低温側で1桁以上にわたって温度に比例した熱容量の減少が見られる．この振舞いは、2次元ハイゼンベルグ強磁性スピン波理論とよく一致する．高温側もより速やかに $1/T^2$ 則に漸近しており、面密度の増加と共にこの系の磁性が三角格子上的純粹な2次元強磁性体に近付いてゆくのが分かる．なお、反強磁性相においても強磁性相においても、ピークを示す温度の1/20程度の低温に至るまで（あるいは、スピンエントロピーが高温値の6%以下になるまで）長距離秩序状態への相転移を示す比熱異常は観測されない．これは有限温度の相転移が揺らぎのために禁制されている等方的な相互作用をもつ低次元スピン系特有の現象である．

図3の中の点線は多体交換モデル（6体交換まで考慮）の高温展開式を使ってデータフィッティングしたもので、その結果は面密度と共に多体交換の大きさが減少してゆくことを示している．これは、三角格子の幾何学的な性質とHe原子間力の剛体球的性格のために、高密度の極限で3体交換が支配的になるためだと考えられ（スピンハミルトニアン3体項は展開して通常の強磁性的なハイゼンベルグ型2体項に帰着する）、WKB近似計算の結果と半定量的に一致する．

今後は、この領域で熱容量の詳細な面密度依存性を測定することにより、交換相互作用のWKB計算や最近の経路積分モンテカルロ計算の結果と詳細な比較を行う予定である．

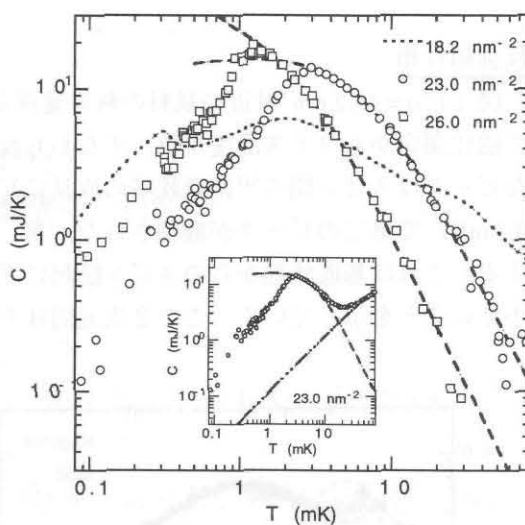


図3. グラファイト上に吸着した2層目の2次元固体ヘリウム3の磁気熱容量（強磁性領域）．

【2】吸着³He薄膜における2次元フェルミ流体の研究【福山，森下】

グラファイト表面に吸着した³He薄膜の2層目は、面密度が 17 nm^{-2} より低いとき2次元のフェルミ流体として振舞う。この系の最大の特徴は、電子系の物質でキャリア数を変えるために行う元素置換と異なり、系の環境を一切変えることなく、吸着量を変えるだけで構成フェルミ粒子の密度（すなわちフェルミ温度）をゼロから高密度領域まで自在にコントロールできることである。現存する実験データも、面密度の増加と共に、理想フェルミ気体から粒子相関の強いフェルミ流体まで大きくその性質が変化することを示している。

図4は、 $\rho = 15.0\text{ nm}^{-2}$ の試料に対する熱容量の測定結果である。数年前、米国ベル研のグループが3 mK付近に比熱の温度依存性に折れ曲がりがあることを報告し（図中黒点）、2次元超流動転移（BCS転移）の可能性を示唆したが、我々の結果は微小なキंकの存在は別として、熱容量の温度依存性に折れ曲がりはないことを示している。ところが、我々のデータは全温度領域で縮退したフェルミ流体特有の温度に比例した熱容量の他に、温度に依存しない微小な成分（ β 項： $\approx 0.6\text{ mJ/K}$ ）が存在することを示している。1 mK以下では、この β 項が観測される熱容量のほとんどを占めている。 β 項の起源について我々は、使用した劈開性グラファイト（グラフォイル）基盤上の不均一な表面部分（単結晶片の粒界など）に吸着した局在³He原子の核スピン自由度によるものと推測している。実際、ほとんど全ての表面が不均一と考えられる他の吸着基盤（例えば、多孔質ガラスや焼結銀微粒子）上では、温度に依存しない、しかし、我々が観測したものに比べ一桁程度大きい熱容量が $1\text{ mK} < T < 60\text{ mK}$ の広い温度範囲で観測されている[論文：2，講演：10，12]。

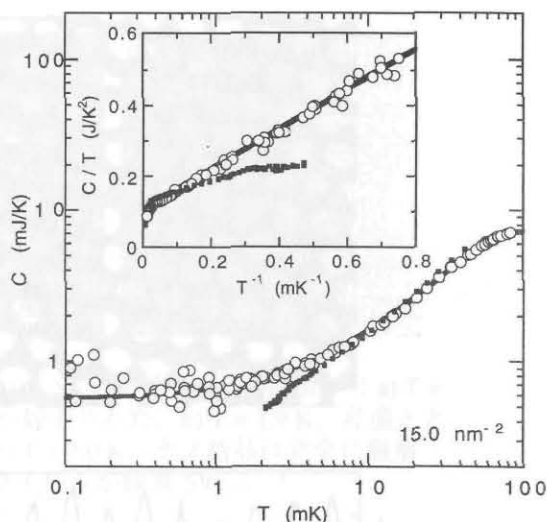


図4. グラファイト上に吸着した2層目の2次元液体ヘリウム3の熱容量。黒点はGreywall-Busch (1990)のデータ。

β 項の存在は2次元³He流体の低温物性を調べる上で不都合なので、今後は非磁性の超流動⁴He薄膜（数原子層）をプレコートした上に³Heの単原子層を吸着させた系で比熱、核磁気共鳴の実験を行う計画である。

【3】超低温走査トンネル顕微鏡を用いた2次元量子固体の研究【福山，森下】

グラファイト表面に吸着した³Heが面密度によって多彩な2次元磁性や2次元フェルミ流体の特性を示すことは前述した通りである。ところが、その状態相図に関しては、過去の散乱実験では種々の制約から十分明らかになっていない。我々は、最近開発した超低温走査トンネル顕微鏡（ULT-STM）を用いて、グラファイト上に吸着した単原子層固体Heの原子配列の実空間での直接観測を試みている[論文：3，講演：2,3,6,8]。

吸着面であるグラファイトのC面内の炭素原子には下層原子の直上に位置するA-サイトと、そうでないB-サイトの2種類のサイトがあり、STMではB-サイト原子のみが選択的に観測されることが知られている。我々の得た清浄グラファイト表面のSTM像（図5a）でもB-サイト原子の三角格子だけが

たように三角格子に重複して $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ の超格子構造が現れることを観測した。この超格子の周期はグラファイトに対するHeの整合固相 ($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 相) のそれと一致しており、何らかの理由で表面吸着した ^4He がトンネル電流に影響したものと考えられる。この超格子構造は試料表面の限られた領域に局在しており、2次元固体 ^4He のナノ結晶 (数10 nm×数10 nmサイズ) に対応すると考えている。実際、1 Kから2 Kに昇温する過程でこの構造は完全に消失するが (図6参照)、これは知られている ^4He 整合固相の融解温度とはほぼ一致する。今回実験した面密度は、結果的に液相と整合固相の共存状態のうちの低密度側の境界付近であったため、固相の割合は非常に少なく、かつ液相に囲まれてかなり空間的

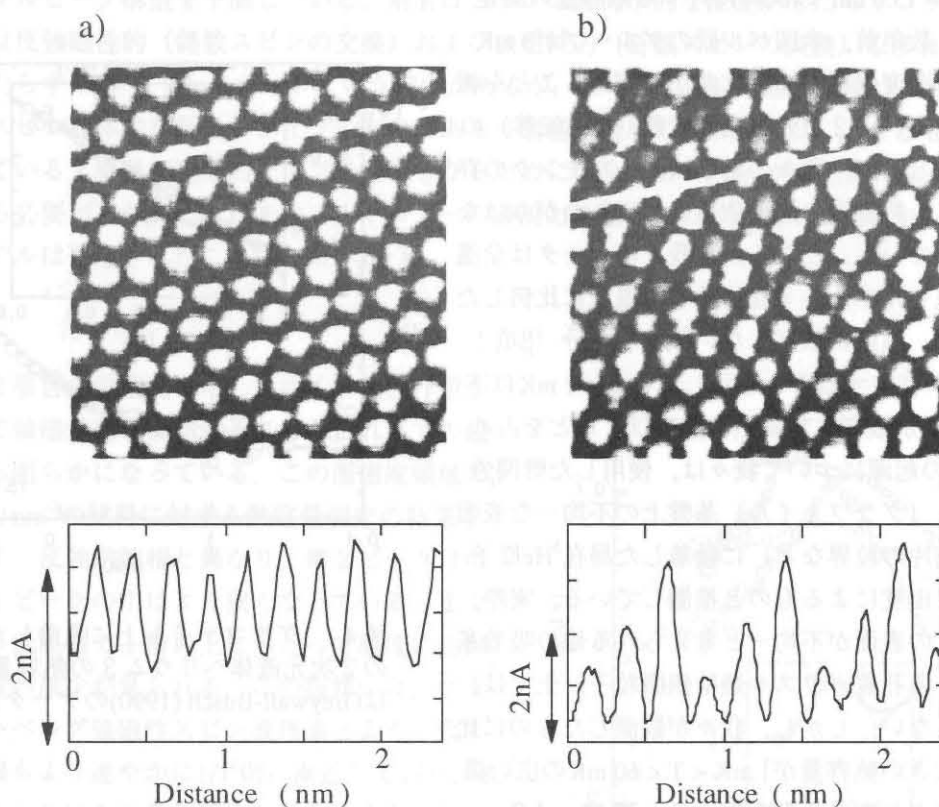


図5. a) 清浄グラファイト表面のSTM像 ($T=4.2\text{ K}, I=1\text{ nA}, V=0.1\text{ V}$) . b) ヘリウム4を吸着させた後のグラファイト表面のSTM像 ($T=120\text{ mK}, I=1\text{ nA}, V=0.1\text{ V}$) .

に不安定であったと考えられる。これは、超格子構造を示す領域の面積が非常に少なかったことや、観測したナノ結晶の外形が3回対称性に基づく純粋に幾何学的なものではなかったことなどの事実と符合する。恐らく、基盤表面の欠陥等にトラップされた数少ないナノ結晶の一つを観測したのではないかと推測している。

一方、吸着したHe原子が何故トンネル電流に影響を及ぼすのかについては、大別して次の二つの機構が考えられそうである。

- 1) He原子がグラファイト基盤表面のフェルミ面近傍の電子状態密度を誘電分極効果で減少させ、トンネル電流が減少する。
- 2) グラファイト表面がSTM探針とHe原子との間の原子間力で局所的に変形し (凹み)、実効的に探針-表面距離が増してトンネル電流が減少する。

このうち2)に関連して、清浄グラファイト表面の凹凸が、探針-表面間相互作用によって実際より

桁違いに強調されることが多くのSTM実験で報告されており (giant corrugation), グラファイト表面の柔らかさに起因するものと理解されている. 我々は今回の実験で, He原子の吸着後にトンネル分光特性に ± 10 meV程度のエネルギーギャップが出現することを観測している. このギャップは丁度 ^4He 原子のグラファイト表面に対する吸着ポテンシャルの大きさ程度であり, 示唆的であるが, この問題のミクロな説明は今後の課題である. いずれにしても, この実験が2次元量子固体を原子レベルで観測した最初の例である可能性は極めて高い.

今後ULT-STM装置を用いて, 吸着単原子層の量子融解現象や整合-不整合転移, 個々の吸着原子の量子トンネル効果などの研究を順次展開してゆく計画である.

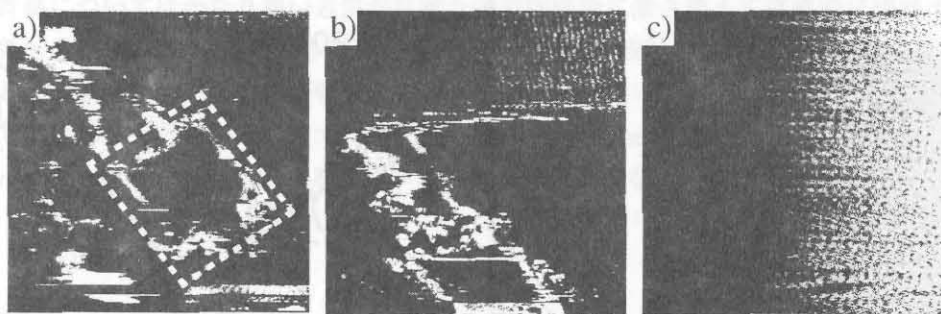


図6. 2次元ヘリウム4ナノ結晶の融解を捉えたSTM像 ($50\text{ nm} \times 50\text{ nm}$): a) $T = 1.2\text{ K}$. 白点線内でFig. 5bに示した超格子構造が観測された. b) $T = 1.9\text{ K}$. 昇温とともにナノ結晶の輪郭が不安定になり始める. c) $T = 2.0\text{ K}$. ナノ結晶は完全に融解し, Fig. 5aに示したB-サイト炭素原子の三角格子のみが観測される.

〔4〕低温微小素子の試作と特性評価【福山, 森下】

試料サイズが数 μm 以下のメソスコピック系における低温量子物性 (例えば, 金属中あるいは半導体ヘテロ接合面の伝導電子系における量子干渉効果) の研究は最近の物理学の興味あるトピックの一つである. 我々はメソスコピックサイズの超伝導薄膜 (超伝導マイクロドット) の混合状態における磁束量子の静的・動的性質に興味を持っている. 本年度は準備段階として, $1\text{ }\mu\text{m}$ 径の常伝導金属の微小リング素子を作成し, これを極低温域まで冷却してAharonov-Bohm (AB) 効果と呼ばれる伝導電子の量子干渉効果を測定することにより, この種の研究に必要な実験技術の獲得を目指した.

図7は電子ビーム描画装置と真空蒸着装置を用いて, リフトオフ法と呼ばれる方法でシリコン基盤上に作成したAB素子のSEM像である. 素子の材質は高純度銀, 線幅は $0.16\text{ }\mu\text{m}$, 矩形リングの一辺の外側の長さは $1.0\text{ }\mu\text{m}$, $T = 4.2\text{ K}$ における電気抵抗は $43\text{ }\Omega$ である.

このAB素子を ^3He - ^4He 希釈冷凍機の混合器に熱接触させ, $20\text{ mK} < T < 5\text{ K}$ の温度範囲で電気抵抗 (R) の磁場 (B) 変化を測定したのが図8である. $T = 20\text{ mK}$ では磁場の印加とともに単調増加する成分の他に, 再現性のあるより細かな抵抗の振動が見られる. この振動の周期と振幅は $7 \pm 1\text{ mT}$, $\Delta R/R \approx 2 \times 10^{-4}$ である. リングの幾何学的形状から磁束量子 $\Phi_0 (= h/e)$ に対応する磁場の振動周期を見積もると $\Delta B = 4 \sim 9\text{ mT}$ となり, 実験値と比較的良好に一致するので, これはAB効果を観測したものと考えられる. この振動は 500 mK でもある程度観測されるが, 5 K では抵抗の磁場変化は一切観測されない. これは高温になるにつれ位相コヒーレンス長がリングのサイズに比べてずっと短くなって干渉が起こらなくなるためと説明される. また, リングの一方が断線した素子では抵抗が磁場とともに単調増加する成分は残るものの, 7 mT 周期の振動が消失することからも, この振動が位相干渉効果に

単調増加する成分は残るものの、7 mT周期の振動が消失することからも、この振動が位相干渉効果によるものであることは明らかである。

今回の予備実験で、0.1 μm レベルの微細加工技術と極低温下での精密な電気抵抗測定等の実験技術を確認することができた。今後は線幅0.1 μm 以下のアスペクト比の高いAB素子を作成し、より明瞭にAB効果を観測することや、Altshuler-Aronov-Spivak (AAS) 効果と呼ばれる電子のアンダーソン弱局在に起因する量子干渉現象 ($\phi_0/2$ 周期) の観測を図る予定である。これと並行して、超伝導マイクロドットにおける磁束量子の研究に移行していく計画である[講演：11]。

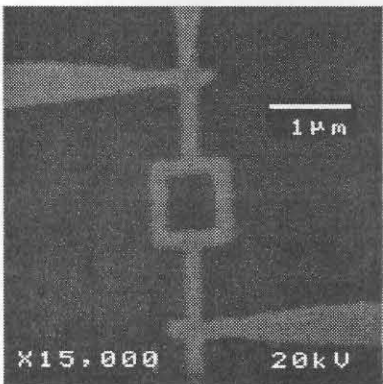


図 7. AB素子のSEM写真.

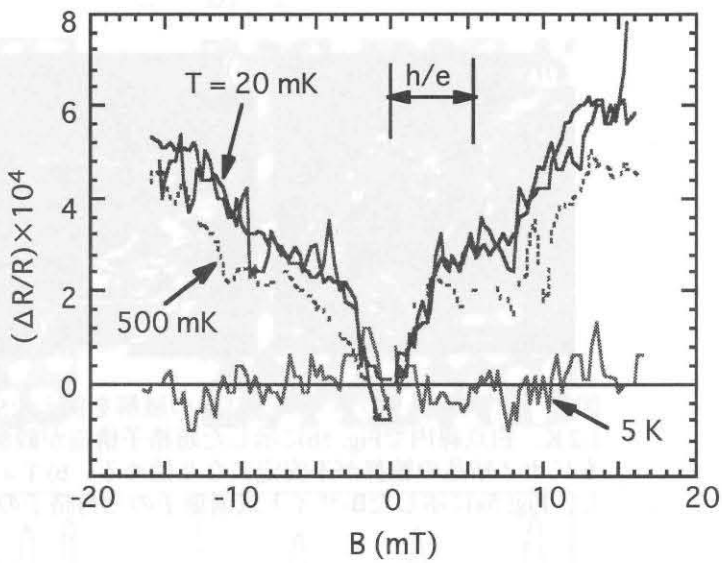


図 8. AB素子の電気抵抗の磁場変化.

〔5〕熱音響理論の定量的検討【富永】

熱音響現象を理解することを目指して建設してきた熱音響理論は定性的には充分満足な結果が得られているが定量的な比較検討はこれまで行われていなかった。愛知教育大学と共同で熱音響自励振動の観測を行い、熱音響理論に基づく数値計算コードTHERMOACOUSTICAによる計算結果と比較し、定量的にも満足な結果が得られた[論文：5,6, 講演：15,19,21].

〔6〕熱音響理論の普及活動【富永】

熱音響理論は難しいと言われる。熱力学の抽象性と流体力学の難しさのためだろう。パルス管冷凍機のパルス管部についてはかなり粗い近似が可能なので回路論に置き換えて直感的に理解することを試みた[論文：4]。また昨年度に引き続き熱音響理論の講義を波動熱輸送研究会で行った[講演：14,16-18,20,22,24]。日米音響学会のジョイントミーティングに招待されThermoacousticsのセッションで招待講演を行った。米国では50人近い物理学者がThermoacousticsの研究を行っているが、日本でThermoacousticsの研究をしている物理学者の数が非常に少ない。これでは早晚追い抜かれるに相違ない。

<論文>

1. Hiroshi Fukuyama, M. Morishita, K. Ishida and K. Yawata: "2D Nuclear Magnetism in Helium Three Thin Films", to be published in J. Low Temp. Phys. (1997).
2. M. Morishita, K. Ishida, K. Yawata and Hiroshi Fukuyama: "Low Temperature Heat Capacities of Liquid ^3He Thin Films", to be published in J. Low Temp. Phys. (1997).
3. N. Mori, C. Bäuerle, T. Kumakura, M. Morishita and Hiroshi Fukuyama: "STM Observations of Helium Atoms Adsorbed on Graphite Surfaces", to be published in J. Low Temp. Phys. (1997).
4. 富永 昭, 春山富義: パルス管冷凍機の回路論的扱い, 低温工学 **31**, 267-278 (1996).
5. Akira Tominaga, Simulation of Thermally Induced Spontaneous Oscillations of Gas in a Resonator, Proc. of 8th Natinal Meeting on Cryocoolers (Beijing, 1996), 10-17.
6. Akira Tominaga, Progress in the Pulse-tube Refrigeration and the Thermoacoustic Theory in Asia, Proc. of ASA/ASJ 3rd Joint Meeting (Honolulu, 1996), 611-616.

<学位論文>

熊倉知央: 「超低温STMを用いた表面量子物性の研究」, (修士論文, 1997年3月).
福里 克: 「超流動ヘリウムの第3音波観測」, (修士論文, 1997年3月).

<講演>

1. M. Morishita, K. Ishida, K. Yawata and Hiroshi Fukuyama: "Low Temperature Heat Capacities of ^3He Thin Films", The 21th International Conference on Low Temperature Physics, (Prague, August 1996).
2. Hiroshi Fukuyama, H. Tan, T. Handa, T. Kumakura and M. Morishita: "Construction of an Ultra-low Temperature Scanning Tunneling Microscope", The 21th International Conference on Low Temperature Physics, (Prague, August 1996).
3. T. Kumakura, H. Tan, T. Handa, M. Morishita and Hiroshi Fukuyama: "Charge Density Waves and Superconductivity in 2H-TaSe_2 ", The 21th International Conference on Low Temperature Physics, (Prague, August 1996).
4. 福山 寛: 「単原子層 ^3He の核磁性 — フラストレーションのある2次元反強磁性量子スピン系の低温比熱」, 日本物理学会秋の分科会—低温・磁性合同シンポジウム (山口大学, 1996年10月).
5. 石田一貴, 森下将史, 八幡和志, 福山 寛: 「吸着ヘリウム3薄膜の低温比熱III」, 日本物理学会秋の分科会 (山口大学, 1996年10月).
6. 福山 寛, 丹 博樹, 半田哲也, 熊倉知央, 森 憲久, 森下将史: 「ミリケルビン温度域におけるSTM/STS実験」, 日本物理学会秋の分科会 (山口大学, 1996年10月).
7. 森下将史, 石田一貴, 八幡和志, 福山 寛: 「固体 ^3He 薄膜の2次元核磁性」, 文部省科学研究費総合研究(A)研究会「マイクロケルビン温度の物性—電子および核—」 (和倉温泉, 1996年11月).
8. 福山 寛: 「グラファイト上に吸着した ^3He 単原子層の2次元物性」, 物性研究所短期研究会「低次元フェルミ流体系の物理」 (東京大学物性研究所, 1996年12月).
9. 石田一貴, 八幡和志, 森下将史, 福山 寛: 「固体 ^3He 薄膜の磁気比熱」, 物性研究所短期研究会「低次元フェルミ流体系の物理」 (東京大学物性研究所, 1996年12月).

10. 森下将史：「液体ヘリウム 4 薄膜上ヘリウム 3 単原子層膜の 2 次元凝集現象における量子効果」，文部省科学研究費重点領域研究第 2 回研究会「多自由度系としての原子集団及び原子のトンネル現象」（賢島研修センター，1996年12月）。
11. 坏 浩行，倉田剛大，森下将史，福山 寛：「低温微小素子の試作と特性評価」，ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー研究発表会（筑波大学，1997年3月）。
12. 森下将史，石田一貴，八幡和志，福山 寛：「2 次元液体ヘリウム 3 薄膜の比熱」，日本物理学会第52回年会（名城大学，1997年3月）。
13. 石田一貴，森下将史，八幡和志，福山 寛：「吸着ヘリウム 3 薄膜の低温比熱IV」，日本物理学会第52回年会（名城大学，1997年3月）。
14. 富永 昭：「エネルギー変換：仕事源W」，平成 8 年度第 1 回波動熱輸送研究会（つくば，4 月 19日）。
15. Akira Tominaga and Taichi Yazaki, "Spontaneous Oscillations of Gas in a Glass Resonator: Observation of the Local Velocity and the Simulation", 16th Int. Cryog. Engineering Conf. (Kitakyushu, 1996).
16. 富永 昭：「熱流束」，平成 8 年度第 2 回波動熱輸送研究会（大阪市立大学，6月14日）。
17. 富永 昭：「エントロピー生成」，平成 8 年度第 3 回波動熱輸送研究会（箱根KKR宮の下，8 月 30日）。
18. 富永 昭：「軸方向の変化」，平成 8 年度第 3 回波動熱輸送研究会（箱根KKR宮の下，8 月 30日）。
19. Akira Tominaga, "Simulation of Thermally Induced Spontaneous Oscillations of Gas in a Resonator", Proc. of 8th Natinal Meeting on Cryocoolers (Beijing, 1996), 10-17 (invited talk).
20. 富永 昭：「THERMOACOUSTICA」，平成 8 年度第 4 回波動熱輸送研究会（産業技術記念館，10月29日）。
21. Akira Tominaga, "Progress in the Pulse-tube Refrigeration and the Thermoacoustic Theory in Asia", Proc. of ASA/ASJ 3rd Joint Meeting (Honolulu, 1996), 611-616 (invited talk).
22. 富永 昭：「計算例」，平成 8 年度第 5 回波動熱輸送研究会（神奈川県立かながわ労働プラザ，1 月17日）。
23. 篠原季次，富永 昭：「熱音響理論によるパルスチューブ冷却器の設計検討」，応用力学学会（日本学術会議，1 月29日）。
24. 富永 昭：「残された問題」，平成 8 年度第 6 回波動熱輸送研究会（フォーラムよこはまセミナー，3 月28日）。